

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 04-010418

(43)Date of publication of application : 14.01.1992

(51)Int.Cl.

H01L 21/316

(21)Application number : 02-111018

(71)Applicant : CATALYSTS & CHEM IND CO LTD

(22)Date of filing : 26.04.1990

(72)Inventor : NAKAJIMA AKIRA
HARADA TAKASHI
KOMATSU MICHIO

(54) SEMICONDUCTOR DEVICE

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide a semiconductor with an insulating film, having a small dielectric constant and a small etch rate and liable to crack during formation because of reduced shrinkage, by forming an insulating silica film using an insulating coating material, which contains a reaction product between silica sol obtained through the hydrolytic polycondensation of a specific alkoxysilane and a partial hydrolyte of alkoxysilane.

CONSTITUTION: A semiconductor device includes an insulating silica film formed of an insulating coating material. The coating material includes a reaction product between silica sol, obtained by hydrolytic polycondensation of an alkoxysilane represented by $R_nSi(OR')_{4-n}$ (R and R' are alkyl, aryl, or vinyl groups with a carbon number of 1 to 8), and a partial hydrolyte of alkoxysilane. The alkoxysilane is tetramethoxysilane or tetraethoxysilane, for example. The silica sol is prepared by adding an alkoxysilane and an alkali catalyst such as ammonia water to aqueous alcohol being stirred. The insulating coating material is prepared by the reaction of a silica sol with an alkoxysilane or its partial hydrolyte.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑫ 公開特許公報(A)

平4-10418

⑤ Int. Cl.⁵

H 01 L 21/316

識別記号

B

庁内整理番号

6940-4M

④ 公開 平成4年(1992)1月14日

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全7頁)

⑤ 発明の名称 半導体装置

② 特 願 平2-111018

② 出 願 平2(1990)4月26日

⑦ 発 明 者 中 島 昭 福岡県北九州市若松区北湊町13-2 触媒化成工業株式会社若松工場内

⑦ 発 明 者 原 田 孝 福岡県北九州市若松区北湊町13-2 触媒化成工業株式会社若松工場内

⑦ 発 明 者 小 松 通 郎 福岡県北九州市若松区北湊町13-2 触媒化成工業株式会社若松工場内

⑦ 出 願 人 触媒化成工業株式会社 東京都千代田区大手町2丁目6番2号

⑦ 代 理 人 弁理士 鈴木 俊一郎

明 細 書

発明の技術的背景

半導体装置は、従来、種々の目的でシリカ系絶縁膜を有している。たとえば、従来公知の半導体装置では、シリコン基板上にシリカ系絶縁膜が設けられており、多層配線構造を有する半導体集積回路では配線層間を絶縁するために用いられたり、さらには素子表面の保護あるいはPN接合の保護などのためにシリカ系絶縁膜が用いられている。

このようなシリカ系絶縁膜は、一般にCVD法、プラズマCVD法等の気相法で形成されている。

また、このようなシリカ系絶縁膜は、シラノールなどの有機ケイ素化合物がアルコールに溶解または分散された状態にある塗布液を所謂SOG法(Spin On Glass法)などによって基板に塗布し、得られた塗膜を約800℃の温度に加熱して硬化させることによってシリカ系絶縁膜を形成することもできる。

しかしながら、SOG法などの従来の塗膜形成方法によって得られたシリカ系絶縁膜は、膜中に含まれている有機ケイ素化合物の未分解有機残基

1. 発明の名称

半導体装置

2. 特許請求の範囲

1) 一般式 $R_n Si(OR')_{4-n}$ (式中、R、R'は炭素数1~8のアルキル基、アリール基またはビニル基を表わし、nは0~3の整数である)で示されるアルコキシシランを加水分解重縮合して得られるシリカゾルと、

前記アルコキシシランの部分加水分解物との反応物を含む絶縁膜形成用塗布液から形成されたシリカ系絶縁膜を有することを特徴とする半導体装置。

3. 発明の詳細な説明

発明の技術分野

本発明は、比誘電率およびエッチレートの小さく、しかも膜形成時の収縮率が小さくヒビ割れがなく、絶縁性、機械的強度、耐薬品性に優れたシリカ系絶縁膜を有する半導体装置に関する。

が分解することに起因してボイドやピンホールが発生し、このために膜の緻密性が失われて比誘電率を小さくすることができないという問題点がある。

さらには、膜形成時における膜の収縮率が大きく、そのために、特に厚膜とした場合にシリカ系絶縁膜にヒビ割れが発生し易くなるなどの問題点もある。

発明の目的

本発明は、上記のような従来技術に鑑みて完成されたものであって、ピンホールあるいはボイドなどが発生することがなく、極めて緻密であって比誘電率およびエッチレートの小さく、しかも成膜時の収縮率が小さく、成膜時にヒビ割れが生じることがなく、密着性、機械的強度、耐薬品性、耐湿性、絶縁性などに優れたシリカ系絶縁膜を有する半導体装置を提供することを目的としている。

発明の概要

本発明の半導体装置は、

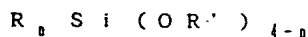
一般式 $R_n Si(OR')_{4-n}$ (式中、R、R'

(式中、nは0～3の整数、R、R'は炭素数1～8のアルキル基、アリアル基またはビニル基)で示されるアルコキシシランを加水分解重縮合して得られるシリカゾルと、

前記したアルコキシシランの部分加水分解物との反応物を含む液が使用される。

このような本発明で用いられる絶縁膜形成用塗布液は、たとえば下記方法によって調製することができる。

まず、シリカゾルは、下記一般式で示される1種または2種以上のアルコキシシランを、水、有機溶媒およびアルカリ触媒の存在下に加水分解重縮合させることにより得られ、このようなシリカゾルの調製法としては、従来より公知の方法を採用することができる。



式中、nは0～3の整数を表わし、R、R'は炭素数1～8のアルキル基、アリアル基またはビニル基を表わしている。

アルコキシシランの具体例としては、テトラメ

は炭素数1～8のアルキル基、アリアル基またはビニル基を表わし、nは0～3の整数である)で示されるアルコキシシランを加水分解重縮合して得られるシリカゾルと、

前記アルコキシシランの部分加水分解物との反応物を含む絶縁膜形成用塗布液から形成されたシリカ系絶縁膜を有することを特徴としている。

発明の具体的説明

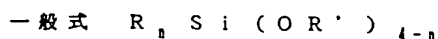
以下、本発明の半導体装置について具体的に説明する。

本発明の半導体装置は、特定のシリカ系絶縁膜を、たとえばシリコン基板上、多層配線構造を有する半導体集積回路の配線層間、素子表面上あるいはPN接合部分上などに有している。

このような特定のシリカ系絶縁膜は、下記のような絶縁膜形成用塗布液から形成される。

絶縁膜形成用塗布液

すなわち、本発明では絶縁膜形成用塗布液として、



トキシシラン、テトラエトキシシラン、テトライソプロポキシシラン、テトラブトキシシラン、テトラオクチルシラン、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、メチルトリイソプロポキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリブトキシシラン、オクチルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン等が挙げられる。

有機溶媒としては、アルコール類、ケトン類、エーテル類、エステル類等が挙げられ、より具体的には、例えばメタノール、エタノール、プロパノール、ブタノールなどのアルコール類、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、プロピレングリコールモノプロピルエーテルなどのグリコールエーテル類、エチレングリコール、プロピレングリコールなどのグリコール類、酢酸メチル、酢酸エチル、乳酸メチル、乳酸エチルなどのエステル類等が用いられる。

アルカリ触媒としては、アンモニア、アミン、

アルカリ金属水酸化物、第4級アンモニウム化合物、アミン系カップリング剤など、水溶液中でアルカリ性を示す化合物が用いられ、反応混合物のpHが7~12、好ましくは8~11となるような量で用いられる。

シリカゾルの調製法をさらに詳細に説明すると、例えば、水-アルコール混合溶媒を攪拌しながら、この混合溶媒にアルコキシシランおよび、例えばアンモニア水のようなアルカリ触媒を添加し、反応させる。

この際、水は、アルコキシシランを構成するSi-OR基1モル当り5~50モル、好ましくは5~2.5モルとなるような量で用いられ、アンモニアは、前記のpH範囲となる量で、例えば0.01~1.0モル/SiO₂モル、好ましくは0.05~0.8モル/SiO₂モルとなるような量で配合される。

反応は、通常、常圧下における用いられる溶媒の沸点以下の温度で、好ましくは沸点より5~10℃程度低い温度で行なわれるが、オートク

レープ等の耐熱耐圧容器を用いる場合には、この温度よりもさらに高い温度で行なうこともできる。

この粒径が50Å未満では、得られる絶縁膜形成用塗布液を用いた膜成形時に、膜面にクラックが発生する傾向があり、一方、500Åを越えると膜にボイドが多発し、緻密な膜が得られない傾向がある。

シリカ粒子は、シリカゾル中に、SiO₂として約50重量%以下、好ましくは40重量%以下となるような量で含まれていることが望ましい。シリカ含量が50重量%を越えるとゲル化し易い傾向がある。

本発明で用いられる絶縁膜形成用塗布液を調製する際には、上記のようにして得られたシリカゾルとアルコキシシランまたはその部分加水分解物とを反応させるが、その際に、前述の方法で得られた未精製のシリカゾルをそのまま用いてもよいが、このように両者を反応させるに先立ち、予めシリカゾルから、限外濾過等の手段により分散媒の水-有機溶媒系を水系に溶媒置換させておくことが好ましい。

この溶媒置換操作は、前述のシリカゾルの加熱

処理前に行なっても良い。

本発明で用いられる絶縁膜形成用塗布液は、上記のようにして、まずシリカゾルを調製したのち、さらにこのシリカゾルと新たなアルコキシシランまたはその部分加水分解物とを反応させることによって得られる。シリカゾルと反応させるアルコキシシランは、シリカゾルの調製に用いられたものと同一のものでも良く、また必ずしも同一のものでなくても良い。この反応においては、シリカゾル中のシリカ粒子の成長あるいは新たなシリカ粒子の生成はほとんど起らず、シリカ粒子の表面で、このシリカ粒子と新たなアルコキシシランとの結合反応が起り、その結果、優れた特性を有するシリカ系絶縁膜を与える塗布液が得られる。

上記塗布液を調製する際のシリカゾルと反応させるアルコキシシランは、予め部分加水分解せずに用いても良いが、常法に従って予め部分加水分解させて得られる部分加水分解物として用いることが好ましく、このようにすると、ゾルの凝集、ゲル化が起こり難くなる傾向がある。

このように加熱処理を行なうと、アルコキシシランの重縮合が一層促進され、密度の大きいシリカ粒子が分散したシリカゾルが得られる。

本発明で用いられる絶縁膜形成用塗布液では、上記のようなシリカゾルは、その平均粒径が約50~500Å、好ましくは100~300Åの範囲内の均一なシリカ粒子であることが好ましい。

このようにアルコキシシランの部分加水分解を行なう際には、通常、水、有機溶媒、酸またはアルカリ触媒が用いられる。有機溶媒およびアルカリ触媒としては、前述したものが挙げられる。酸触媒としては、具体的には、塩酸、硝酸、硫酸などの無機酸、酢酸、シュウ酸などの有機酸または金属石ケンなど水溶液中で酸性を示す化合物が用いられる。

水は、アルコキシシランを構成するSi-O-R基1モル当り、通常、0.1~2モル、好ましくは0.5~2モルの量で用いられる。酸触媒が用いられる場合には、反応液のpHが、通常、0~6、好ましくは1~3となるような量で、また、アルカリ触媒が用いられる場合には、反応液のpHが、通常、7~10、好ましくは7~8となるような量で用いられる。

上記のような条件で得られるアルコキシシラン部分加水分解物の分子量は、約100~10,000、好ましくは500~5000（ポリスチレン換算分子量）であることが望ましい。

$R^1_n Si(OR^2)_{4-n}$ （式中、 R^1 は炭化水素基であり、 R^2 は炭化数1~4のアルキル基であり、 n は0~3である）で示されるアルコキシシランの1種または2種以上を、有機溶媒、水および酸の存在下で部分加水分解し、

次いで得られた部分加水分解液をアルカリと接触させ、得られた塗布液にさらに必要に応じて酸を加えて酸性にしてなる、アルコキシシラン部分加水分解物の縮重合物を含むシリカ系被膜形成用塗布液を、絶縁膜形成用塗布液における部分加水分解物として用いることもできる。

本発明で用いられる絶縁膜形成用塗布液を調製する際には、シリカゾルと、アルコキシシランあるいはその部分加水分解物とを、

シリカゾル中の SiO_2 (A)の重量/アルコキシシランあるいはその部分加水分解物中の SiO_2 (B)の重量=0.1~20.0、好ましくは0.25~10.0となるような重量比で混合させることが望ましい。

成分(A)の量が多くなると、得られるシリカ

上記のようにしてアルコキシシランの部分加水分解物が得られるが、さらに、先に出願した特願平1-189,046号あるいは特願平1-253,580号記載の方法により得られる塗布液を本発明に係る絶縁膜形成用塗布液における部分加水分解物として用いることもできる。すなわち、特願平1-189,046号に記載されているように、

一般式 $R^1_n Si(OR^2)_{4-n}$ （式中、 R^1 は炭化水素基であり、 R^2 は炭化数1~4のアルキル基であり、 n は0~3である）で示されるアルコキシシランの1種または2種以上を、有機溶媒、水およびアルカリ触媒の存在下で部分加水分解し、

次いで得られた部分加水分解液を、水および酸触媒の存在下でさらに部分加水分解してなる、アルコキシシラン部分加水分解物の縮重合物を含むシリカ系被膜形成用塗布液を、絶縁膜形成用塗布液における部分加水分解物として用いることができる。あるいは、特願平1-253,580号に記載されているように、一般式

系被膜は、耐熱性、耐湿性には優れるが、厚い膜厚を有するシリカ系被膜を形成するとクラックが発生しやすくなる傾向が生じ、一方成分(B)の量が多くなると、得られるシリカ系被膜は耐熱性、耐湿性に劣る傾向が生ずる。

そして、上記のようにシリカゾルとアルコキシシラン部分加水分解物とを混合した後、約100℃以下、好ましくは80℃以下の温度で、また温度条件等により変動するが、通常、0.5~5時間、好ましくは1~3時間加熱処理を行なう。このような処理を行なうと、本発明に係る絶縁膜形成用塗布液が得られる。なお、処理温度の下限には特に制限はないが、低温になる程反応時間が長くなり、生産性に劣る。一方、100℃を越えると、アルコキシシランの加水分解反応が進行し過ぎるため好ましくない。

シリカ系絶縁膜の形成

本発明に係る半導体装置におけるシリカ系絶縁膜を形成するには、上記のようにして得られた被膜形成用塗布液をシリコン基板上、多層配線構造

を有する半導体集積回路の配線層間、素子表面あるいはPN接合部分上などの半導体装置上に塗布し、次いで加熱すればよい。なお、このような塗布液の塗布方法としては、スプレー法、スピンコート法、ディップコート法、ロールコート法、スクリーン印刷法、転写印刷法など通常の方法を採用することができる。

上記の加熱温度は、通常、300～900℃、好ましくは450～800℃程度である。

このようにして形成されるシリカ系絶縁膜の膜厚は、シリカ系絶縁膜を形成する場所によって異なり、たとえば、シリコン基板上の場合は通常1000～2500Å程度であり、多層配線構造を有する半導体集積回路の配線層間の場合は約5000Å以上とする必要がある場合がある。

発明の効果

本発明によれば、ピンホールあるいはボイドなどが発生することがなく、極めて緻密であって比誘電率およびエッチレートが小さく、しかも成膜時の収縮率が小さく、成膜時にヒビ割れが生じる

ことがなく、密着性、機械的強度、耐薬品性、耐湿性、絶縁性などに優れたシリカ系絶縁膜を有する半導体装置を得ることができる。

〔実施例〕

以下、本発明を実施例によりさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に何ら制約されるものではない。

1. (シリカゾルの調製)

(1) 純水101.5gとメタノール406.1gの混合溶液にエチルシリケート-28(多摩化学工業製)110.4gを加えたのち、65℃に加熱し、この温度を保持しながら5%アンモニア水89.5gを3時間かけて添加した。添加終了後、さらにこの温度で1時間熟成した。熟成後、この反応液を限外濾過で未反応エチルシリケート、メタノール、アンモニアを除去すると同時に純水を加えた。その結果SiO₂濃度5重量%、平均粒径約100ÅのSiO₂粒子が分散したシリカゾル(A)を得た。

(2) 純水203.0gとメタノール812.2

gの混合溶液にメチルシリケート-51(多摩化学工業製)121.6gを加えたのち、45℃に加熱し、この温度を保持しながら5%アンモニア水150gを5時間かけて添加した。添加終了後、さらにこの温度で1時間熟成した。その後、未反応メチルシリケート、メタノール、アンモニアを除去すると同時に純水を加え、SiO₂濃度5重量%、平均粒径約110ÅのSiO₂粒子が分散したシリカゾル(B)を得た。

(3) 純水139.1gとメタノール169.9gの混合溶液を60℃に保持し、これに、エチルシリケート-28の水-メタノール溶液(重量比2/8の水/メタノール混合液2450gにエチルシリケート-28を532.5g加えたもの)2982.5gおよび0.25%アンモニア水596.4gを同時に52時間かけて添加した。添加終了後、さらにこの温度で3時間熟成した。その後、限外濾過法で同様の操作を行ない、SiO₂濃度10重量%、平均粒径約250ÅのSiO₂粒子が分散したシリカゾル(C)を得た。

(4) エチルシリケート-28の代わりにエチルシリケート-40(多摩化学工業製)を372.8g用いた以外は、シリカゾル(C)と同様の条件で水分散ゾルを得た。この水分散ゾルをオートクレーブで150℃、12時間処理し、SiO₂濃度10重量%、平均粒径約270ÅのSiO₂粒子が分散したシリカゾル(D)を得た。

(5) エチルシリケート-40の代わりに、メチルトリメトキシシラン169.4gとエチルシリケート-28 266.3gの混合液を用いた以外は、シリカゾル(D)と同様の条件で調製し、SiO₂濃度10重量%、平均粒径約250ÅのSiO₂粒子が分散したシリカゾル(E)を得た。

(6) シリカゾル(A)をオートクレーブで150℃、12時間処理して、シリカゾル(F)を得た。(SiO₂濃度、粒子の平均粒径はシリカゾル(A)と同じ。)

2. (アルコキシシラン部分加水分解物の調製)

(1) エチルシリケート-28(多摩化学工業製)357.1g、エタノール402.9gおよび純

水 240.0 g の混合溶液に濃硝酸を添加し、pH を 1.5 に調整した。この溶液を 50℃、1 時間反応させることによって部分加水分解物 (A) を得た。

(2) メチルシリケート-51 (多摩化学工業製) 196.1 g、エタノール 683.9 g および純水 120.0 g の混合溶液に 1% アンモニア水を添加し、pH を 8.0 に調整した。これを 50℃、1 時間加水分解させ、その後、濃硝酸で pH を 2.5 に調整し、さらに 50℃、30 分間処理した (部分加水分解物 (B))。

(3) メチルトリメトキシシラン 454.5 g、エタノール 185.5 g および純水 360.0 g の混合溶液を濃硝酸で pH 1.0 に調整したのち、50℃、2 時間加水分解させた。その後、1% アンモニア水を添加し、pH を 7.0 に調整したのち、さらに 50℃ で 2 時間処理した。(部分加水分解物 (C))。

(4) メチルトリエトキシシラン 227.3 g、エチルシリケート-28 357.1 g、エタノール 175.0 g および純水 240.0 g の混合溶液を 1% アンモニア水で pH 8.5 に調整し、50℃、2 時間加水分解させた。次いで、95% 酢酸水溶液で pH 4 に調整したのち、さらに 50℃ で 5 時間処理した。(部分加水分解物 (D))。

(5) メチルトリメトキシシラン 272.7 g、メチルシリケート-51 156.9 g、エタノール 330.4 g および純水 240.0 g の混合溶液を濃硝酸で pH 2.0 に調整し、50℃、1 時間加水分解させた。次いで、1% トリエタノールアミン水溶液で pH を 7.0 に調整したのち、さらに 50℃ で 2 時間処理した。(部分加水分解物 (E))。

3. (塗布液の調製)

上記のようにして得られたシリカゾルと上記のようにして得られたアルコキシシラン部分加水分解物を表 1 記載の所定の割合で混合し、50℃ で 1 時間加熱処理した。次いで、ロータリーエバポレーターで、水、アルコールを留去し、プロピレ

ングリコールモノプロピルエーテルまたは乳酸エチルと溶媒置換し、 SiO_2 濃度が 20 重量% である塗布液 I ~ VI を調製した。

P = プロピレングリコールモノプロピルエーテル

表 1

	シリカゾル (a)	部分加水 分解物 (b)	a / b	溶媒
I	A	A	7 / 3	P
II	C	B	5 / 5	P
III	B	C	3 / 7	L
IV	D	D	7 / 3	L
V	E	E	8 / 2	L
VI	F	A	7 / 3	L

(注)

(1) a / b : シリカゾル中の SiO_2 と部分加水分解物中の SiO_2 の重量比。

(2) 溶媒 : L = 乳酸エチル

次いで、これらの塗布液 I ~ IV および比較のために上記部分加水分解物 A および B を、それぞれシリコンウェハー上にスピナーにより 4000 rpm で塗布し、150℃ で 10 分乾燥した後、窒素中で 800℃ で 30 分間加熱して表 2 に示す膜厚のシリカ系絶縁膜を得た。

これらのシリカ系絶縁膜について、クラックの発生の有無を目視で観察し、比誘電率およびエッチレートを測定した。結果を表 2 に示す。

なお、比誘電率はこれらのシリカ系絶縁膜の上に A 膜の蒸着膜を形成し、これを測定用電極としてインピーダンスアナライザーで測定した。また、エッチレートは純水 1 ml に HF 5 cc を溶解した HF 水溶液中にそれぞれのシリカ系絶縁膜を 5 分間浸漬した前後の膜厚を測定し、この前後の膜厚差から算出した。

表 2 の結果から、実施例のシリカ系絶縁膜は、比較例のシリカ系絶縁膜と比較して比誘電率およ

びエッチレートがともに小さい緻密な膜であることが分かる。

表 2

塗布液	膜 厚 (Å)	クラック	比誘電率	エッチレート (Å/分)
I	2400	無	5.2	15
II	2100	無	5.7	14
VI	2500	無	4.9	15
A	1300	無	8.6	22
B	1400	無	7.8	30

次に上記塗布液Ⅲ～Ⅴおよび加水分解物C、D、Eを、2μmのライン アンド スペースピッチのA₁配線が施されたシリコンウェハー上にスピコート法で塗布し、150℃で5分間乾燥した。しかる後窒素中で400℃で30分間加熱してシリカ系絶縁膜を形成した。これらのシリカ系絶縁膜の膜厚はいずれも5000Å程度であった。

表 3

塗布液	クラック	比誘電率	コンタクト 抵抗 (K-2)
Ⅲ	無	3.5	11
Ⅳ	無	4.3	18
Ⅴ	無	4.2	16
C	有	3.5	18
D	有	5.1	25
E	有	5.0	22

表3の結果から、比較例の層間絶縁膜にクラックの発生が見られるのに対し、本発明に係る層間絶縁膜においてはクラックの発生はなく、また、本発明に係る層間絶縁膜は比誘電率が小さく、かつコンタクト抵抗も小さく、本発明によれば優れた半導体装置が提供できることが分かる。

特許出願人 触媒化成工業株式会社
代 理 人 弁 理 士 鈴 木 俊 一 郎

さらにこれらの膜上にそれぞれCVD法により厚さ2000ÅのSiO₂膜を設け、層間絶縁膜を形成した。この層間絶縁膜にRIEドライエッチング法で0.8μm□のコンタクトホールを設けた後、2層目のA₁配線をスパッタリング法により形成し、2層A₁配線素子を作成した。

このようにして得られたそれぞれの素子のA₁配線間のコンタクト抵抗、層間絶縁膜のクラック発生の有無および比誘電率を測定した結果を表3に示す。